

Rec'd PCT/PTO 02 FEB 2005

PATENT COOPERATION TREATY

PCT/EP2003/008722



translation

# PCT

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference B01/0610PC	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/008722	International filing date (day/month/year) 06 August 2003 (06.08.2003)	Priority date (day/month/year) 09 August 2002 (09.08.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 209/84		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 2 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 08 March 2004 (08.03.2004)	Date of completion of this report 03 November 2004 (03.11.2004)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/008722

## I. Basis of the report

### 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
 pages 1-17, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
 pages 1-7, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the drawings:  
 pages 1/4-4/4, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
 pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
 pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

### 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

### 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

### 4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

### 5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International Application No.

PCT/EP 03/08722

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

D1: US 5 756 845 (FAMI EP 0 729 937)

D2: US 6 022 999

Both documents are cited in the application.

#### 1. Novelty

Processes for the production of isophoronediamine are known from the prior art as follows.

In D1 a process of this kind is carried out in three steps: first, reaction between isophorone nitrile and ammonia in the presence of a metal oxide catalyst; second, hydrogenation with  $H_2$ ,  $NH_3$  and hydrogenation catalyst at  $T = 50-100^\circ C$  and  $P = 50-300$  bar; third, hydrogenation with  $H_2$ ,  $NH_3$  and hydrogenation catalyst at  $T = 110-160^\circ C$  and  $P = 150-300$  bar. The first aminating hydrogenation yields a crude isophoronediamine which is treated by means of further hydrogenation.

D2 uses acids, especially 2-ethylhexanoic acid, to increase the cis/trans isomer ratio.

Neither of the two above-mentioned documents refers to

separation by distillation (step (b)). Novelty is therefore acknowledged for the subject matter of claims 1 to 7.

## 2. Inventive step

The closest process is known from D1. It differs by virtue of the absence of the separation by distillation (step (b)) found in the present application, that is to say, no fraction having a cis/trans isomer ratio of less than 63:37 is isolated and subjected to further processing. The problem addressed is that of providing a process for the production of isophoronediamine having a cis/trans isomer ratio of at least 73:27. The solution proposed is the process defined in claim 1. There is nothing in D1 to suggest such further processing by distillation. A comparative example has been carried out in the present application (example 1: D1 and example 2: application). The advantages are elevated overall yield and smaller proportion of by-product (pages 12 to 14). The process defined in claim 1 involves an inventive step.

Rec'd PCT/PTO 02 FEB 2005

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM  
GEBIET DES PATENTWESENS**

**PCT**

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT**

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 04 NOV 2004

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B01/0610PC	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/08722	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 06.08.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09.08.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/84		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.


2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  08.03.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  03.11.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Seelmann, M Tel. +49 89 2399-8335



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-17 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-7 eingegangen am 16.06.2004 mit Telefax

**Zeichnungen, Blätter**

1/4-4/4 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48:3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/08722

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Feststellung
- |                                |                    |
|--------------------------------|--------------------|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-7  |
|                                | Nein: Ansprüche    |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-7  |
|                                | Nein: Ansprüche    |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-7 |
|                                | Nein: Ansprüche:   |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

### **Punkt V**

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung.

**D1** US 5 756 845 (FAMI EP 0 729 937)

**D2** US 6 022 999

Beide Dokumente sind in der Anmeldung zitiert.

### **1. Neuheit**

Verfahren zur Herstellung von Isophorondiamin sind vom Stand der Technik bekannt:

In **D1** wird ein solches Verfahren in drei Stufen geführt: erstens Reaktion zwischen Isophoronitril und Ammonia in Gegenwart eines Metall-Oxid Katalysators; zweitens Hydrierung mit  $H_2$ ,  $NH_3$  und Hydrierungskatalysator mit  $T = 50-100^\circ C$  und  $P = 50-300$  bar; drittens Hydrierung mit  $H_2$ ,  $NH_3$  und Hydrierungskatalysator mit  $T = 110-160^\circ C$  und  $P = 150-300$  bar. Die erste aminierende Hydrierung führt zu einem Roh-Isophorondiamin, das durch eine weitere Hydrierung behandelt wird.

In **D2** werden Säuren, insbesondere 2-Ethylhexansäure eingesetzt, um das cis/trans Isomerverhältnis zu erhöhen.

Die destillative Trennung, Stufe b), ist in keinem von den beiden genannten Dokumenten erwähnt. Neuheit konnte daher für den Gegenstand gemäß der Ansprüche 1 bis 7 anerkannt werden.

### **2. Erfinderische Tätigkeit**

Das nächstliegende Verfahren ist aus **D1** bekannt. Es unterscheidet sich durch die Abwesenheit der destillativen Trennung, Stufe b) der vorliegenden Anmeldung, d.h. keine Fraktion mit einem cis/trans Isomerverhältnis kleiner als 63/37 wird isoliert und weiterverarbeitet. Die Aufgabe besteht darin, ein Verfahren zur Herstellung von Isophorondiamin mit einem cis/trans Isomerverhältnis von mindestens 73/27 bereitzustellen. Als Lösung wird das Verfahren gemäß des Anspruchs 1 vorgeschlagen. **D1** gibt keinen Hinweis, um auf eine solche destillative Weiterverarbeitung zu kommen. Ein Vergleichsbeispiel wurde in der vorliegenden Anmeldung durchgeführt (Beispiel 1: **D1** und Beispiel 2: Anmeldung). Die Vorteile sind erhöhte Gesamtausbeute und geringerer Anteil des Nebenproduktes (Seiten 12 bis 14). Das Verfahren gemäß des Anspruchs 1 beruht auf einer erfinderischen Tätigkeit.



PCT/EP03/08722

16.06.2004

## Geänderte Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von im wesentlichen reinem 3-Aminomethyl-3,5,5-Trimethylcyclohexylamin (Isphorondiamin, IPDA) mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis von mindestens 73/27 enthaltend folgende Schritte:
  - a) Bereitstellen von Roh-IPDA mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis  $< 73/27$ ;
  - b) Reinigen und Trennen des Roh-IPDA in eine Fraktion mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis von mindestens 73/27 und eine Fraktion mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis kleiner als 63/37;
  - c) Isomerisieren der in Schritt b) erhaltenen Fraktion des im wesentlichen reinen IPDA mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis kleiner als 63/37 zu IPDA mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis im Bereich von 63/37 bis 66/34 in Gegenwart von  $H_2$ ,  $NH_3$  und einem Hydrierkatalysator und Rückführen in Schritt a) des Verfahrens.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Reinigen und Trennen des Roh-IPDA in Schritt b) des Verfahrens durch Destillation erfolgt.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt b) des Verfahrens in mindestens zwei räumlich voneinander getrennten Destillationskolonnen durchgeführt wird.
4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass von den Destillationskolonnen mindestens eine eine Trennwandkolonne ist.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt b) des Verfahrens das IPDA in eine Fraktion mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis im Bereich von 73/27 bis 76/24 und eine Fraktion mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis kleiner als 63/37 getrennt wird.
6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt a) des Verfahrens Roh-IPDA mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis  $\leq 70/30$  bereitgestellt wird.

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt c) des Verfahrens als Hydrierkatalysator ein Katalysator enthaltend mindestens ein Übergangsmetall ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Silber, Gold, Eisen, Cobalt, Nickel, Rhenium, Ruthenium, Rhodium, Palladium, Osmium, Iridium, Platin, Chrom, Molybdän und Wolfram, bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Silber, Eisen, Cobalt, Nickel, Ruthenium, Rhodium, Palladium, Osmium, Iridium und Platin, besonders bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Cobalt, Nickel, Ruthenium, Iridium, Rhodium, Palladium und Platin, eingesetzt wird.

~~8. Verfahren zur Herstellung von 3-Aminomethyl-3,5,5-trimethylecyclohexylamin (Geophorandiemin, IPDA) mit einem cis/trans-Isomerenverhältnis im Bereich von 63/37 bis 66/34 durch Umsetzung von IPDA mit einem beliebigen cis/trans-Isomerenverhältnis mit  $H_2$  und  $NH_3$  an einem Hydrierkatalysator.~~

~~9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass als Hydrierkatalysator ein Katalysator enthaltend mindestens ein Übergangsmetall ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Silber, Gold, Eisen, Cobalt, Nickel, Rhenium, Ruthenium, Rhodium, Palladium, Osmium, Iridium, Platin, Chrom, Molybdän und Wolfram, bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Silber, Eisen, Cobalt, Nickel, Ruthenium, Rhodium, Palladium, Osmium, Iridium und Platin, besonders bevorzugt ausgewählt aus der Gruppe Kupfer, Cobalt, Nickel, Ruthenium, Iridium, Rhodium, Palladium und Platin, eingesetzt wird.~~

~~10. Verfahren nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktion bei einer Temperatur von 70 bis 200°C, bevorzugt von 80 bis 150°C, besonders bevorzugt von 90 bis 130°C, und/oder bei einem Druck von 1 bis 300 bar, bevorzugt von 10 bis 250 bar, besonders bevorzugt von 100 bis 240 bar, durchgeführt wird.~~